

11) Veröffentlichungsnummer:

0 026 398

A<sub>2</sub>

(12)

#### EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

(21) Anmeldenummer: 80105568.2

(51) Int. Cl.3: A 61 K 6/08

22) Anmeldetag: 17.09.80

(30) Priorität: 26.09.79 DE 2938875

- (43) Veröffentlichungstag der Anmeldung: 08.04.81 Patentblatt. 81/14
- Benannte Vertragsstaaten:
  BE CH DE FR GB IT LI LU NL SE

- (7) Anmelder: BAYER AG

  Zentralbereich Patente, Marken und Lizenzen
  D-5090 Leverkusen 1, Bayerwerk(DE)
- 22) Erfinder: Podszun, Wolfgang, Dr. Wolfskaul 4 D-5000 Köln 80(DE)
- Erfinder: Walkowiak, Michael, Dr. Albertus-Magnus-Strasse 10 D-5090 Leverkusen 1(DE)
- (72) Erfinder: Schulz, Hans-Hermann, Dr. Am Neulandkreuz 23 D-5653 Leichlingen 1(DE)
- (54) Dentalwerkstoffe auf Basis von organischen Kunststoffen in pastöser Form.
- (5) Gegenstand der Erfindung sind Dentalwerkstoffe auf Basis von organischen Kunststoffen in pastöser Form, die aus
- a) polymerisierbaren Bindern,
- b) vernetzten Peripolymerisaten,
- c) Glasperlen und gegebenenfalls
- d) feinteiligen anorganischen Füllstoffen

Diese Pasten eignen sich hervorragend als Zahnfüllmaterial.

BAYER AKTIENGESELLSCHAFT

509 Leverkusen, Bayerwerk

Zentralbereich

5

10

15

25 mm

Patente, Marken und Lizenzen Si-by-c

# Dentalwerkstoffe auf Basis von organischen Kunststoffen in pastöser Form

Die Verwendung von gefüllten Kunststoffmaterialien als Werkstoffe für künstliche Zähne, Brücken, Kronen und Zahnfüllungen ist bekannt. Zur Herstellung von Zahnfüllungen werden diese Materialien üblicherweise in Form von Zubereitungen aus anorganischen Füllstoffen, gegebenenfalls organischen Polymerisaten und polymerisierbaren Bindern zur Anwendung gebracht.

Die bisher bekannten Materialien haben auf Grund ihrer Konsistenz und Klebrigkeit anwendungstechnische und klinische Nachteile.

Das Einbringen des Materials in die Kavität erfolgt durch Einstreichen, häufig wird die eingebrachte Masse, bedingt durch das Haften am Füllinstrument, teilweise nach dem Einfüllen in die Kavität von der Kavitätenwandung abgezogen. Diese Erscheinung ist in der Regel von Zahnarzt nicht feststellbar und führt daher zu nicht wandständigen inkompletten Füllungen mit den bekannten Nachteilen.

Besonders nachteilig wirkt sich das verstärkte Kleben der bisher bekannten Füllmaterialien bei mehrflächigen Kavitäten aus. So ist, wie aus der Amalgamfülltechnik her bekannt, ein enwandfreies Ausfüllen der Kavität nur möglich, wenn ein Füllmaterial portionsweise eingebracht wird. Bei dieser Fülltechnik werden zunächst kleine Portionen wandständig in die Kavitätenwinkel gestopft und anschließend erst die Kavität ausgefüllt. Eine entsprechende Arbeitsweise ist mit den bisher bekannten Kunststoffmaterialien nicht möglich.

Während bei einflächigen Füllungen im Frontzahnbereich die Oberflächengestalt durch Anlegen von Matrizenbändern erzielt wird, bereitet die Formung von okklusalen Flächen mit Materialien, die eine klebende Konsistenz aufweisen,

Schwierigkeiten. So war bei den bisher bekannten Materialien eine Formung der Kauflächenbezirke nur in groben Zügen möglich. Nach dem Aushärten war daher üblicherweise eine Formgebung durch rotierende Schleif- und Polierkörper erforderlich. Bekanntlich sind hierbei

Verletzungen der benachbarten Schmelzbezirke in der Regel nicht zu vermeiden. Die Folgen hiervon sind Verfälschungen des Kauflächenreliefs und gegebenenfalls okklusale Störungen.

Man hat versucht, die wünschenswerte Oberflächengestalt durch Einstellung einer "schnitzbaren" Eigenschaft zu erzielen. Dieses "schnitzbare" Verhalten tritt jedoch erst dann ein, wenn schon ein gewisser Polymerisationsumsatz erreicht ist. Erfolgt in diesem Zustand die Bearbeitung des Füllmaterials, so kann ein Auf- bzw. Einreißen der

5

Füllungsoberfläche und damit eine Schädigung der Füllung nicht ausgeschlossen werden. Diese Risse, erzielt durch "Schnitzen", können Eintrittspforten für Microorganismen und für Farbstoffe mit den bekannten Auswirkungen sein. Darüber hinaus kann das Bearbeiten von schon anpolymeri-

Darüber hinaus kann das Bearbeiten von schon anpolymerisierten Materialien zu Polymerisationsstörungen führen.

Gegenstand der Erfindung sind nun Dentalwerkstoffe auf Basis von organischen Kunststoffen in pastöser Form, die aus

- 10 a) polymerisierbaren Bindern,
  - b) vernetzten Perlpolymerisaten
  - c) Glasperlen und gegebenenfalls
  - d) feinteiligen anorganischen Füllstoffen

bestehen.

5

20

Es wurde überraschenderweise gefunden, daß diese Pasten hervorragend als Zahnfüllmaterial geeignet sind.

Die erfindungsgemäßen Materialien lassen sich in einer Konsistenz herstellen, die eine Verarbeitung ermöglicht, wie sie in der Amalgamfülltechnik gebräuchlich ist, das heißt, sie lassen sich stopfen und modellieren.

Auf Grund einer nicht klebenden, festen, stopfbaren Konsistenz gelingt es, ein- und mehrflächige Kavitäten in mehreren Portionen wandständig aufzufüllen. Durch die besondere Eigenschaft des Materials kommt es beim portionsweisen Stopfen nicht zu Schichtenbildung, d.h. die einzelnen Portionen verbinden sich homogen miteinander.

Nach dem jeweiligen Einbringen einer Portion in die Kavität und dem Stopfen bzw. Adaptieren bleibt diese, ohne ihre Form zu verändern am Ort liegen, d.h. sie läßt sich auch nicht elastisch deformieren.

Die Kavitätenfüllung läßt sich ferner, auf Grund der besonderen Konsistenz, mit sogenannten Amalgampistolen durchführen, ohne daß sich das Füllmaterial wieder von der Kavitätenwandung abzieht oder an der Pistolen-öffnung haften bleibt.

Die erfindungsgemäßen Materialien zeigen eine durch

Instrumente formbare Konsistenz schon unmittelbar
nach dem Anmischvorgang. Diese Konsistenz ermöglicht
es, daß nach dem Auffüllen der Kavität, mittels geeigneter Instrumente, z.B. aus Kunststoff oder aus
Metall, wie sie in der Amalgamfülltechnik verwendet
werden, die okklusale individuelle Kauflächengestalt
geformt wird.

Die pastösen erfindungsgemäßen Dentalwerkstoffe auf Basis von organischen Kunststoffen gehen durch Aushärtung in feste Körper über, die ein zahnähnliches Aussehen zeigen und den Vorteil besitzen, gut feinschleifbar zu sein.

Zur Herstellung der erfindungsgemäßen Dentalwerkstoffe werden 18-50, vorzugsweise 22-35 Gew.-Teile polymerisierbare Binder, 20-65, vorzugsweise 25-55 Gew.-Teile vernetzte Perlpolymerisate, 5-45, vorzugsweise 10-40 Gew.-Teile Glasperlen, gegebenenfalls bis zu 30 Gew.-Teile feinteilige anorganische Füllstoffe und 0,01 bis 5 Gew.-Teile Starterzusätze zu einer Paste vermischt.

Zur Erleichterung der Pastenfertigung können Inhibitoren oder Lichtschutzmittel zugesetzt werden. Für bestimmte Indikationen kann es angezeigt sein, zusätzlich Farbstoffe zuzusetzen.

Als polymerisierbare Binder eignen sich die Ester der Methacrylsäure von einwertigen und mehrwertigen Alkoholen gegebenenfalls im Gemisch mit anderen Vinylmonomeren. Besonders günstig ist es, wenn der Gehalt an Methacrylsäureestern über 80 % beträgt.

Als geeignete Ester der Methacrylsäure seien beispielsweise aliphatische und cycloaliphatische Ester genannt, wie Methylmethacrylat, Ethylmethacrylat und Cyclohexylmethacrylat.

Besonders gut geeignet sind ferner Ester von mehrwertigen Alkoholen, mit einem Molekulargewicht von 190-10 000, insbesondere Ester von 2 und 3-wertigen Alkoholen mit einem Molekulargewicht im Bereich von 190 bis 800, wie z.B. Ethylenglykoldimethacrylat,

5

15

20

25 .

Triethylenglykoldimethacrylat, Neopentylglykoldimethacrylat oder Trimethylolpropantrimethacrylat, des
weiteren Urethan und Ureidpolymethacrylate, die durch
Umsetzung von Hydroxyalkylmethacrylaten bzw. Aminoalkylmethacrylaten mit Polyisocyanaten zugänglich sind,
z.B. die Verbindungen

$$\begin{array}{c} \text{CH}_{3} \\ \text{CH}_{2} = \text{C} - \text{COO} \left( - \text{CH}_{2} \right)_{2} - \text{OOC} - \text{NH} - \left( \text{CH}_{2} \right)_{6} - \text{NH} - \text{COO} - \left( \text{CH}_{2} \right)_{2} - \text{OOC} - \text{C} = \text{CH}_{2} \end{array}$$

Sehr gute Pasten erhält man, wenn als Binder zumindest in Anteilen Verbindungen vom Typ des Bis-GMA der Formel

eingesetzt werden.

5

10

15

Zahnfüllmassen mit guter Konsistenz und einem hohen Niveau der mechanischen Festigkeit werden besonders dann erhalten, wenn man als Binder Mischungen aus verschiedenen Methacrylsäureestern verwendet, z.B. Mischungen von 20-70 Gew.-Teilen Bis GMA und 80-30 Gew.-Teilen Triethylenglykoldimethacrylat.

Die zur Pastenherstellung eingesetzten vernetzten Perlpolymerisate sollen zu mehr als 80 Gew.-% aus polymerisierten Methacrylsäureestern, vorzugsweise Methacrylsäuremethylester, bestehen. Als vernetzend wirkende Monomere eignen sich die mit Methylmethacrylat copoly-5 merisierbaren Polyvinylverbindungen, wie beispielsweise Ethylenglykoldimethacrylat, Divinylbenzol, wobei der Vernetzeranteil 2 bis 35 Gew.-% des Monomergemisches betragen sollte. Neben dem Vernetzer können weitere Monomere in das Perlpolymerisat einpolymerisiert sein, 10 um beispielsweise das Quellverhalten des Perlpolymerisats zu beeinflussen oder un die mechanischen Eigenschaften des ausgehärteten Dentalkunststoffs zu modifizieren. Die mittlere Korngröße der eingesetzten Perlpolymerisate soll zwischen 5 und 100µ liegen; besonders günstig ist 15 der Bereich von 8 bis 80µ.

Gut geeignet für die Pastenzubereitung sind ferner Perlpolymerisate gemäß den deutschen Patentanmeldungen
P 23 49 280 vom 14.11.78 und P 28 49 936 vom 17.11.78.
Die Verwendung von mit anorganischen Füllstoffen gefüllten Perlpolymerisaten gemäß P 28 49 936 vom 17.11.78
ist besonders vorteilhaft, da auf diese Weise Dentalwerkstoffe erhalten werden können, bei denen sowohl
das Perlpolymerisat als auch die Perlzwischenräume
gleichermaßen anorganischen Füllstoff enthalten.

Die verwendeten Glasperlen sollen einen mittleren Perlendurchmesser von 5 bis  $80\mu$ , vorzugsweise von 10 bis  $40\mu$  besitzen.

20

Wenn auf hohe Transparenz des ausgehärteten Dentalwerkstoffes Wert gelegt wird, müssen die Brechungsindices der Glasperlen und des Polymerisates aufeinander abgestimmt werden. Zur Herstellung eines röntgenopaken Dentalwerkstoffes können besonders vorteilhaft Gläser mit Schwermetallionen, beispielsweise Ba, La oder Zr, eingesetzt werden.

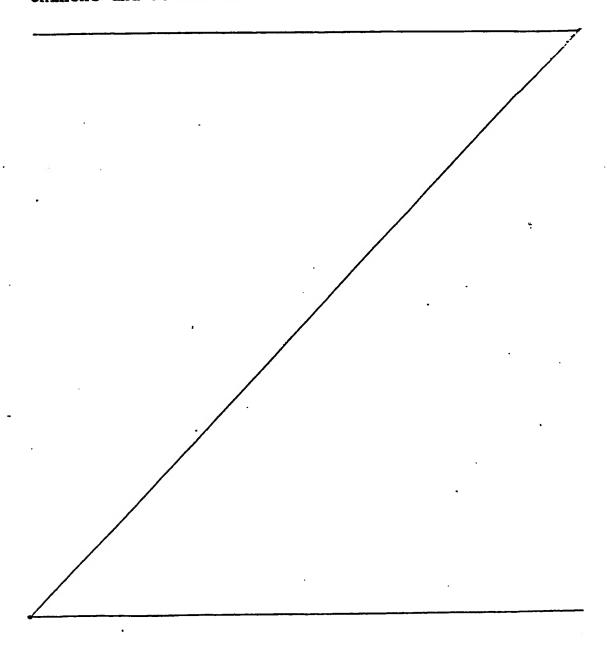
Gut geeignete Glasperlen sind zum Beispiel Refleyperlen RPG 22 (R) der Jenaer Glaswerke Schott und Gen./Mainz.

- 10 Es ist zweckmäßig, die Glasperlen zu "silanisieren", d.h. mit einer speziellen haftvermittelnden Silanverbindung (beispielsweise Trimethoxy-(3-methacryloyloxypropyl)-silan oder Vinyltrimethoxysilan zu behandeln, um den Verbind zwischen Glas und Kunststoffmatrix zu verbessern.
- Als feinteiliger anorganischer Füllstoff für die erfindungsgemäßen Dentalmaterialien sind in erster Linie Siliziumdicxyd, Aluminiumdioxyd, Silikate und Silikatgläser geeignet, sofern ihre mittlere Teilchengrößen im Bereich von 1mμ-1μ liegt. Besonders günstig ist die Verwendung von flammpyrolytisch gewonnenem, amorphem Siliziumdioxyd, und zwar vorzugsweise von amorphem Siliziumdioxid mit einer Primärteilchengröße von 5-30 mμ und einer spezifischen Oberfläche gemessen nach BET von 40-400 m²/g.

Der feinteilige anorganische Füllstoff kann ebenso wie die Glasperlen silamisiert werden, jedoch ist dieser Nachbehandlungsschritt zur Herstellung der erfindungsgemäßen Dentalwerkstoffe nicht unbedingt erforderlich.

5 Zur Aushärtung der erfindungsgemäßen Dentalwerkstoffe können die üblichen Startersysteme verwendet werden, d.h. Radikale, Anionen oder Kationen liefernde Systeme, die eine radikalische, anionische oder kationische Polymerisation auslösen können. Im Falle von Radikale 10 liefernden Systemen sind Peroxide oder aliphatische Azoverbindungen besonders geeignet, beispielsweise Benzoylperoxid, Laurylperoxid oder Azoisobuttersäuredinitril, die üblicherweise in Mengen von 0,1 bis 5 Gew.-% eingesetzt werden. Während die Härtung bei erhöhter 15 Temperatur allein durch Peroxide oder andere Radikalstarter durchgeführt wird, ist zur Härtung bei Raumtemperatur ein Zusatz von Beschleunigern, vorzugsweise aromatischen Aminen notwendig. Geeignete Beschleuniger sind N-N-substituierte Toluidine und Xylidine, wie 20 N, N-Dimethyl-p-Toluidin oder N, N-Bis-(2-hydroxyethyl) xylidin. Gute Aushärtung erzielt man mit 0,5-3 % Aminzusatz. Eine günstige Darbietungsform für ein Peroxid/ Beschleuniger aktiviertes System ist die 2-Pasten-Form, wobei eine Paste den Radikalstarter und die andere den 25 Beschleuniger enthält und die Aushärtung durch Mischen beider Pasten eingeleitet wird.

Auch eine Aushärtung unter Verwendung von UV-Licht oder sichtbarem Licht bei geeigneter Sensibilisierung ist eine sehr gute Methode. Geeignete Photoinitiatoren sind beispielsweise Benzophenon und seine Derivate, Benzoin und seine Derivate, wie Benzoinether, Anthrachinone und aromatische Disulfide.



#### Beispiel 1

# Herstellung eines mit amorphem Siliziumdioxid gefüllten Perlpolymerisats

#### Polymerisation

5 Reaktionsgefäß:

6-Liter-Autoklav mit Doppelankerrührer

Lösung I

2500 ml dest. Wasser

Dispergatur-

lösung

500 ml 7,5 %ige wäßrige Lösung des

Copolymerisats aus 1 Gew.-Teil Metha-

10

crylsäure und 1 Gew.-Teil Methylmethacrylat mit dem pH = 6 und der

Viskosität: 3650 cp

Lösung II:

684 g Methylmethacrylat

36 g Ethylenglykoldimethacrylat

15

308 g silanisiertes amorphes Silizium-

dioxid (BET-Oberfläche 170 m<sup>2</sup>/g)

7,2 g Benzoylperoxyd

Lösung I wird vorgelegt und 5 Minuten verrührt. Bei stehendem Rührer gibt man Lösung II auf einmal zu und bespült den Autoklaven mit Stickstoff. Anschließend wird 5 bar Stickstoff aufgedrückt, die Rührergeschwindigkeit auf 400 UpM eingestellt und auf 80°C aufgeheizt. Bei einsetzender exothermer Reaktion wird so stark gekühlt, daß die Temperatur unter 90°C bleibt.

25 Man läßt 2 Stunden bei 80°C nachrühren.

#### Aufarbeitung

Der Ansatz wird abgeblasen und mit dest. Wasser auf 10 l verdünnt. Nach der Zugabe von 180 g Eisessig wird 15 Minuten auf 90-100°C aufgeheizt. Das ausfallende Perlpoly-5 merisat wird nach Erkalten abgesaugt, durch dreimaliges Aufrühren in je 5 l dest. Wasser gewaschen und bei 60°C getrocknet. Ausbeute 866 g, mittlere Perldurchmesser 45µ.

#### Beispiel 2

# Erfindungsgemäßer pastöser Dentalwerkstoff

## 10 A) Peroxidpaste

- 130 g Perlpolymerisat aus Beispiel 1
- 100 g Reflexperlen RPG 22 (R)
  - 90 g Bis GMA (Nupol 46 4005 der Firma Freeman Chemical)
  - 50 g Triethylenglykoldimethacrylat
- 15 2,5 g Benzoylperoxid

Die einzelnen Komponenten werden in einen Kneter gegeben und 60 Minuten lang intensiv geknetet, wobei während der letzten 10 Minuten ein Vakuum von ca. 20 Torr angelegt wird. Man erhält auf diese Weise eine knetbare Masse von besonders fester Konsistenz.

#### B) Aminpaste

20

Perlpolymerisat, Glasperlen, Bis GMA und Triethylenglykol-

dimethacrylat werden in den gleichen Mengen wie bei der Peroxidpaste (A) eingesetzt und verarbeitet. Anstelle des Peroxids werden jedoch 1,8 g N,N-Dimethyltoluïdin eingesetzt.

#### 5 C) Pastöse Masse zum Füllen von Zähnen

Gleiche Teile (z.B. je 200 mg) der Amin- und Peroxidpaste werden 30 Sekunden lang intensiv gemischt. Die erhaltene Mischung ist in hervorragender Weise als Zahnfüllmaterial geeignet. Sie härtet in wenigen Minuten unter geringem Polymerisationsschrumpf aus.

#### Beispiel 3

10

#### Erfindungsgemäßer pastöser Dentalwerkstoff

Entsprechend der in Beispiel 2 angegebenen Arbeitsweise wird aus

- 15 140 g Perlpolymerisat gemäß Beispiel 1
  80 g Reflexperlen RPG 22 (R)
  80 g Bis GMA
  50 g Triethylenglykoldimethacrylat
  3 g Benzoinisopropylether
- 20 eine pastöse Mischung hergestellt.

Dieses Material ist hervorragend als Zahnfüllungsmaterial geeignet. Es härtet unter Bestrahlung mit UV-Licht (Uviolite-Lampe der Firma Espe) innerhalb von 40 Sekunden in Schichtdicken von 2,5 mm aus.

#### Patentansprüche

- Dentalwerkstoffe auf Basis von organischen Kunststoffen in pastöser Form, dadurch gekennzeichnet, daß sie aus
- 5 a) 18-50, vorzugsweise 22 bis 35 Gew.-% polymerisierbaren Bindern
  - b) 20-65, vorzugsweise 25 bis 55 Gew.-% vernetzten Perlpolymerisaten mit einer mittleren Korngröße von 8 bis 80µm
- c) 5-45, vorzugsweise 10 bis 40 Gew.-% Glasperlen mit einer mittleren Korngröße von 5 bis 80μm und
  - d) gegebenenfalls bis zu 30 Gew.-% anorganischem Füllstoff mit einer mittleren Korngröße von 1mμ bis 1μ

bestehen.

15

Dentalwerkstoffe nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die polymerisierbaren Binder zu mehr
als 80 Gew.-% aus Estern der Methacrylsäure bestehen.

- 3. Dentalwerkstoffe nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß die polymerisierbaren Binder zu
  mindestens 50 Gew.-% aus Estern der Methacrylsäure mit zwei oder mehr polymerisierbaren
  Doppelbindungen bestehen.
- 4. Dentalwerkstoffe nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die vernetzten Perlpolymerisate zu
  mehr als 80 Gew.-% aus Estern der Methacrylsäure
  aufgebaut sind.
- Dentalwerkstoffe nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß die vernetzten Perlpolymerisate bis
  zu 50 Gew.-% eingeschlossene anorganische Füllstoffe mit einer mittleren Korngröße von 1mμ bis
  1μ enthalten.
- 15 6. Dentalwerkstoffe nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Glasperlen silanisiert sind.
  - 7. Dentalwerkstoffe nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, daß die Glasperlen mit Trimethoxy-(3-methylacryloyloxypropyl)-silan behandelt sind.
- 20 8. Dentalwerkstoffe nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, daß die Glasperlen mit Vinyltrimethoxysilan behandelt sind.
  - Dentalwerkstoffe nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die feinteiligen anorganischen Füllstoffe aus Kieselsäure bestehen.

25

10. Dentalwerkstoffe nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die feinteiligen anorganischen Füllstoffe silanisiert sind. 1) Veröffentlichungsnummer:

**0 026 398** A3

# EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

② Anmeldenummer: 80105568.2

6) Int. Cl.3: A 61 K 6/08

Anmeldetag: 17.09.80

@ Priorität: 26.09.79 DE 2938875

Anmelder: BAYER AG, Zentralbereich Patente, Marken und Lizenzen, D-5090 Leverkusen 1, Bayerwerk (DE)

- Veröffentlichungstag der Anmeldung: 08.04.81
   Patentblatt 81/14
- Benannte Vertragsstaaten: BE CH DE FR GB IT LI LU NL SF
- Weröffentlichungstag des später veröffentlichten Recherchenberichts: 06.05.81 Patentblatt 81/18
- Erfinder: Podszun, Wolfgang, Dr., Wolfskaul 4, D-5000 Köin 80 (DE) Erfinder: Walkowiak, Michael, Dr., Albertus-Magnus-Strasse 10, D-5090 Leverkusen 1 (DE) Erfinder: Schulz, Hans-Hermann, Dr., Am Neulandkreuz 23, D-5653 Leichlingen 1 (DE)
- Dentalwerkstoffe auf Basis von organischen Kunststoffen in pastöser Form.
- Gegenstand der Erfindung sind Dentalwerkstoffe auf Basis von organischen Kunststoffen in pastöser Form, die aus
  - a) polymerisierbaren Bindern,
  - b) vernetzten Peripolymerisaten.
  - c) Glasperlen und gegebenenfalls
- d) feinteiligen anorganischen Füllstoffen bestehen.
- Diese Pasten eignen sich hervorragend als Zahnfüllmaterial.

### **EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT**

O Dunzie Ge Zangulogo EP 80 10 5568

	EINSCHLÄ	KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int. Cl. <sup>3</sup> )		
Kategorie	Kennzeichnung des Dokuments maßgeblichen Teile	s mit Angabe, soweit erforderlich, der	betrifft Anspruch	
	* Seite 2, 2 Zeile 4; 3 Seite 7, 2	Zeile 1 bis Seite 4, Seite 5, Zeile 11 bi Zeile 4; Zeil <b>e</b> 29 8, Zeile 14; An-	1-10 s	A 61 K 6/08
	11G A 2 6/1	 7 /68 /F W DOUGUERT	V) 1 10	
	* Spalte 2, 3, Zeilen Zeilen 22	7 498 (E.W. DOUGHERT Zeilen 59-69; Spalt 9-28; Spalte 4, -37; Spalte 5, Zeile 50; Ansprüche 1-7 *	е	RECHERCHIERTE SACHGEBIETE (Int. CL.3)  A 61 K 6/08
	* Seite 3, 2 4, Zeilen	2 258 (E.W. DQUGHERT Zeilen 16-22; Seite 7-14; Beispiele 3,5 25, Zeilen 6-17; 1-15 *	<u> </u>	
	* Seite 5, Zeile 17; Ansprüche & DE - A - 2  FR - A - 2 18 SEIYAKU KABUS: * Seite 5,	736 891  2 186 (MOCHIDA HIKI KAISHA) Zeilen 4-38; Beispiche 1,3,4 * 259 490	1-10	KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE  X: von besonderer Bedeutung A: technologischer Hintergrund O: nichtschriftliche Offenbarung P: Zwischenliteratur T: der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze E: kollidierende Anmeldung D: in der Anmeldung angeführter Dokument
1	Der vorliegende Recherchenb	ericht wurde für alle Patentansprüche erst	elit.	L: aus andern Gründen angeführtes Dokument  &: Mitglied der gleichen Patent- familie, übereinstimmende Dokument
Recherch	Den Haag	Abschlußdatum der Recherche 02–02–1981	Prüfer G]	ERMINARIO



A TO THE

# EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

	EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE	KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int. CL3)	
Categorie	Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der Maßgeblichen Teile	THE GLY	
·	FR - A - 2 028 274 (K. KLIMET et al.)	Anspruch	
	* Seite 1, Zeilen 1-21; Seite 1, Zeilen 28-37; Seite 2, Zeilen 11-28; Seite 3, Zeilen 1-8; Seite 4, Zeile 25 bis Seite 5, Zeile 14; Seite 5, Zeilen 32- 34; Beispiel 3; Ansprüche 1- 3 *		
	& DE - A - 2 000 771		
			RECHERCHIERTE SACHGEBIETE (Int. Cl.4)
{			
		:	
		· •	
į			
		4	
		Ì	
DA Farre	1503.2 06.78		